

気泡液体間の物質移動に関する研究

著者	菊池 淳
号	129
発行年	1970
URL	http://hdl.handle.net/10097/11078

氏 名 (本籍)	菊 池 淳 (宮城県)
学 位 の 種 類	工 学 博 士
学 位 記 番 号	工 第 1 2 9 号
学位授与年月日	昭和 4 6 年 2 月 3 日
学位授与の要件	学位規則第 5 条第 2 項該当
最 終 学 歴	昭和 3 9 年 3 月 東北大学大学院工学研究科応用化学専攻修士 課程修了
学 位 論 文 題 目	気泡・液体間の物質移動に関する研究

(主査)

論文審査委員	教授 前田 四郎	教授 岩崎 広次
	教授 大谷 茂盛	教授 只木 楨力

論 文 内 容 要 旨

第 1 章 緒 論

気泡，液体間の物質移動現象はガス吸収，精留，気液反応など多くの単位操作および化学反応において重要な役割を演じているので古くから多くの研究がなされているが，装置内の液の流動や気泡の分散状態など複雑な因子の影響を受けるのでいまだ不明の点が多い。

そこで本研究では気泡，液体間の物質移動現象を明らかにし，ついで工業的にも重要な気泡塔などの気液接触装置の解析をおこなった。

ところで，気泡，液体間の物質移動現象を明らかにするためには，まず静止液体中を上昇する単一気泡の物質移動機構を知り，ついで気泡群の物質移動機構を知る必要がある。

そこで本研究では、まず第1章において単一気泡ならびに気泡群の物質移動に関する既往の研究を概説し、問題点を明らかにした。ついで第2章～第4章において単一気泡の物質移動機構を明らかにし、さらに第5章～第7章において気泡群の物質移動について考察し気液接触装置の解析をおこなった。

第2章 単一小気泡の物質移動 その1

(汚染された水～ガス系)

気泡、液体間の物質移動に関する文献値間の相異はとくに小気泡(本論文では気泡相当径 d_e が 0.35 cm 以下の気泡を小気泡と定義した)の場合著しいものであり、いまだ気泡の物質移動現象は明確ではない。

ところで、気泡の物質移動に関する実験的研究の多くは溶媒として水を用いているが、気泡の運動は水中における微量不純物の影響を受けやすく、したがって気泡の運動と密接な関係下にある物質の移動もまたその影響を受けるものと考えられる。しかし従来の研究は単に物質移動係数と気泡相当径、気泡年令との関係を検討したもので、気泡の運動をも考慮して物質移動を解析しようとした研究は比較的少ない。

そこで本章では文献値間の相異の原因を明らかにし、小気泡の物質移動機構を明らかにする目的で、写真撮影法より小気泡の運動ならびに物質移動を検討した。

その結果(i)気泡の運動ならびに物質移動は水の性状の差異で著しく異なり、しかも気泡が小さくなるにつれて固体球の挙動を示す傾向が認められた。(ii)文献値間の不一致の原因は水の性状の差異と考えられた。(iii)上昇速度と物質移動係数とは相関が認められ、一般に上昇速度が大きい場合は小さい場合に比して物質移動係数は大であった。したがって水中における気泡の物質移動係数を示す際には上昇速度も合わせ示す必要があると考えられた。

第3章 単一小気泡の物質移動 その2

(精製された水および有機溶媒～ガス系)

第2章において単一小気泡の物質移動機構を解明する目的で水中における気泡の運動ならびに物質移動を検討したが、その結果気泡の運動は気泡が小さくなるにつれて非精製系(本論文では小気泡の抵抗係数 C_D が固体球の値を示す場合を非精製系と定義した)の挙動を示す傾向が認められ、また気泡の物質移動も気泡が小さくなるにつれて固体球の挙動を示す傾向が認められた。これは水中における微量不純物の影響と考えられるが、その影響を定量的に解析することは現状ではきわめて困難である。したがって小気泡の物質移動機構を解明するためには不純物の影響のない、いわゆ

る精製系（本論文では小気泡の抵抗係数 C_D が只木・前田の式Eq.(1)であらわされる場合を精製系と定義した）における実験が必要と考えられるが、このような研究はいまだなされていない。

そこで本章では精製系における小気泡の物質移動機構を明らかにするため、精製した水および有機溶媒（*n*-ヘプタン，*n*-プロピルアルコール，*i*-アミルアルコールおよびベンゼン）を用いて写真撮影法により諸因子の影響を検討した（尚ガスは炭酸ガス，メタン，窒素およびヘリウムを用いた）。

その結果(i)抵抗係数 C_D は只木・前田の式Eq.(1)でほぼあらわされ、したがって本実験で用いた溶媒はすべて精製系と考えられた。

$$C_D = 18.5 R_g^{-0.82} \quad (1)$$

ここに、 $C_D = 4 d_g g / 3 U^2$ ， $R_g = d_g U \rho / \mu$ で U ， ρ ， μ ， g はそれぞれ気泡上昇速度，液密度，液粘度および重力加速度である。

(ii)気泡の上昇速度はガスの不溶性，可溶性に関係なく液の物性ならびに気泡の大きさで定まった。(iii)物質移動係数 K_L は気泡年齢には無関係で，液の物性ならびに気泡の大きさで定まった。(iv) $Sh / (R_g \cdot S_c)^{1/2}$ は溶媒およびガスの種類に無関係で R_g のみで定まった。すなわち， $100 \leq R_g \leq 800$ では $Sh / (R_g \cdot S_c)^{1/2}$ は球形ポテンシャル理論または球形境界層理論とほぼ一致し， $1 \leq R_g \leq 100$ では本実験式Eq.(2)でほぼあらわされた。

$$Sh / (R_g \cdot S_c)^{1/2} = 0.651 R_g^{0.114} \quad (2)$$

ここに $Sh = K_L d_g / D_L$ ， $S_c = \mu / \rho D_L$ で D_L は液相拡散係数である。

第4章 大気泡の物質移動

大気泡の場合（本論文では気泡相当径 d_g が0.35 cm以上の気泡を大気泡と定義した）は小気泡の場合と比較して物質移動係数に関する文献値間の差異は顕著ではないが，しかしながら気泡の物質移動と気泡の運動とを同時に考察した研究は少なく，いまだ大気泡の物質移動機構も明確ではない。

ところで大気泡の場合には気泡の伸縮運動がはげしいので，第2章および第3章で用いた写真撮影法では気泡の体積変化を正確に求めることができない。

そこで本章では大気泡の体積変化を正確に求めることのできる水銀デラトメータ法を用い，大気泡の運動ならびに物質移動について検討した。

その結果，水～炭酸ガス系（物質移動のある場合）の運動は水～空気系（物質移動のない場合）の既往の実験結果と一致し，また気泡の物質移動は球形ポテンシャル理論（つまり浸透説）で大略

あらわされた。

第5章 並流式気泡塔の物質移動特性

工業的に重要な気液接触装置を解析するには気泡群からの物質移動特性を知る必要がある。しかるに気泡群からの物質移動に関する研究は従来気泡塔などにおいて多くなされているが、これら研究の多くは装置全体の容量係数または物質移動係数に対する操作条件、物性などの影響を実験的に求めたもので、装置内における単一気泡の運動および物質移動を考慮して解析した研究は少ない。

ところで工業的に多くみられる気泡は相当径約 0.3 cm 以上のものであるが、大気泡の場合には第4章で示したように単一気泡の物質移動はほぼ浸透説（つまりポテンシャル流れ）にしたがう。

そこで本章では気泡群中の単一気泡の物質移動について浸透説を仮定し、さらに半径 r_0 の球形気泡が周期的に1ヶずつ発生するとし、また気泡および液の流れは押し出し流れとする、などの仮定をおこない連続気泡モデルを提案した。

ついでこのモデルを検討するために水～炭酸ガス系の吸収実験をおこなった。

その結果本モデルで並流式気泡塔の物質移動特性が大略あらわされた。

第6章 気泡群の化学吸収に関する考察

（化学吸収速度におよぼす被吸収ガスの初濃度の影響）

第2章～第5章において単一気泡および気泡群の物質移動特性（被吸収ガスが液相内で反応しない場合）をほぼ明らかにした。それによると比較的大きい気泡の物質移動はほぼ浸透説であらわされた。本章では被吸収ガスが液相内で反応する場合、つまり化学吸収の場合について浸透説に準拠して考察した。

さて化学吸収に関する研究は従来より多くなされているが、その多くは被吸収ガスの初濃度が零の条件で求められたもので、液相内で被吸収ガスについて不可逆一次反応が起る場合の吸収速度 N は Eq. (3) であらわされるとしている。

$$\bar{N} = \bar{\beta} K_L c^{(i)} \quad (3)$$

ここに、 $\bar{\beta}$ 、 $c^{(i)}$ はそれぞれ反応係数および気液界面における被吸収ガスの濃度である。

しかしながら、第5章で用いた並流式気泡塔などにおける気泡群からの化学吸収を考えると、前に上昇していった気泡からガスが吸収されるので液中には被吸収ガスがある程度存在しており初濃度は零ではない。したがって気泡群の化学吸収には既往の研究を適用することはできない。

そこで本章では液相の量ならびにガス側抵抗の有無を考慮して、不可逆一次反応をとまなり場合の化学吸収速度におよぼす初濃度の影響を理論的に求め、さらに濃度推進力について、2, 3 の考

察を加えた。

その結果，吸収速度は初濃度によってかなり変化しており，Eq.(3)のように推進力として $c^{(i)}$ をとると， $\bar{N}/c^{(i)} (= \bar{\rho} K_L)$ は初濃度の影響を大きく受けた。

元来 $\bar{\rho} K_L$ は流動条件などによってきまり，初濃度のような操作条件には無関係と考えられていた。したがってEq.(3)のように推進力として $c^{(i)}$ をとることはきわめて不合理と考えられる。

そこで推進力について，2，3考察した結果，推進力として界面濃度 $c^{(i)}$ と液中の平均濃度 \bar{c}_{av} との差をとると， $\bar{N}/(c^{(i)} - \bar{c}_{av})$ は初濃度にはほとんど無関係となり， $(c^{(i)} - \bar{c}_{av})$ がもっとも合理的な推進力と考えられた。

第7章 二重管式気泡塔の物質移動特性

第5章および第6章で考察したごとく，気泡群中の単一気泡に着目した場合，気泡と接触する液中には一般に被吸収ガスが含まれていると考えられ，この場合化学吸収速度は液中の被吸収ガスの初濃度によって大きく変化している。したがって気泡群の化学吸収を考える際には初濃度を考慮する必要がある。

そこで本章では並流式気泡塔の一種である二重管式気泡塔における物質移動特性に関する一考察として，第5章で提出した連続気泡モデルを化学吸収の場合に拡張し，ついでベンゼン～塩素系の吸収実験をおこないモデルを検討した。

その結果，二重管式気泡塔における物質移動は本章のモデルで大略あらわし得た。

以上第5章および第7章の結果から，気泡群の物質移動は大略単一気泡の物質移動であらわし得た。

第8章 総 括

結論として本論文を要約し第2章から第7章までの結果を総括した。

審 査 結 果 の 要 旨

化学工業においては気泡塔など各種気液接触装置が広く使用されており、従って気泡、液体間の物質移動現象は化学工学上最も基礎的で、かつ重要なものの一つである。しかし気泡、液体間の物質移動に関する研究は従来より数多くなされているものの、最も単純と考えられる静止液体中における単一気泡の物質移動現象さえ複雑で不明の点が多く、したがって気泡群と液体間の物質移動現象もいまだ明確でない。

本論文は気泡、液体間の物質移動現象を明確にするために、まず単一気泡の物質移動機構を明らかにし、ついで気泡群の物質移動について考察し、気泡塔の解析をおこなった結果を述べたもので、全編8章より成る。

第1章は緒論で、まず本研究の目的を述べ、既往の研究を調査検討している。

第2章では、単一小気泡(気泡相当径 $0.3\sim 0.5\text{ cm}$ 以下)の運動ならびに物質移動が水の精製の差異で著しく異なることを明らかにし、それが文献値間の不一致の原因であることを示した。

第3章においては微量不純物が含まれていないと考えられる精製溶媒(水および種々の有機溶媒)を用いて実験をおこない、単一小気泡の運動および物質移動におよぼす諸因子の影響を検討し、

- 1) 気泡の上昇速度はガスの溶解度には関係なく、液の物性ならびに気泡の大きさで定まること。
- 2) 物質移動係数は気泡年齢に無関係であること など従来疑問となっていた点について明確な結論を得ている。これによって第2章の結果も十分説明しうる。

第4章では単一大気泡(本論文では気泡相当径が $0.3\sim 0.5\text{ cm}$ 以上の気泡と定義した)の運動ならびに物質移動について検討し、気泡の外部流体がポテンシャル流れをしていると仮定した理論式に一致することを明らかにした。

第5章においては前述の単一気泡で得られた知見のもとに気泡群の物質移動について考察し、連続気泡モデルを提出した。そしてそのモデルで工業的装置として重要な並流式気泡塔の物質移動特性が十分にあらわされることを示した。

第6章では気泡群の化学吸収について考察し、吸収速度におよぼす被吸収ガスの初濃度の影響を理論的に検討し、初濃度のある場合の合理的な濃度推進力を提出した。

第7章では第5章および第6章で得られた知見のもとに連続気泡モデルを化学吸収の場合に拡張した。

そしてそのモデルで並流式気泡塔の一種である二重管式気泡塔の物質移動特性が十分あらわされることを示した。

第8章は総括である。

以上要するに本論文は気液接触装置設計の基礎となる諸問題を実験的，理論的に解析し，すぐれた知見を得たもので，化学工学の発展に寄与するところが少なくない。

よって，本論文は工学博士の学位論文として合格と認める。